

ПОЛУЧЕНИЕ ПАРНЫХ ПОТЕНЦИАЛОВ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ГЕЛИЯ С ИОНАМИ ЦЕРИЕВО-ГАДОЛИНИЕВОЙ КЕРАМИКИ ИЗ КВАНТОВО-ХИМИЧЕСКИХ РАСЧЕТОВ

Жиганов А.Н.¹, Коромыслов А.В.^{1*}, Рыжков М.В.², Купряжкин А.Я.¹

¹⁾ Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, г. Екатеринбург, Россия

²⁾ Институт химии твердого тела УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия

*E-mail: a.v.koromyslov@gmail.com

Разработка топливных элементов для атомно-водородной энергетики и получение высококонцентрированных растворов изотопов гелия в дефектных ионных кристаллах предполагает детальное знакомство с дефектообразованием в цериево-гадолиниевой керамике. Самостоятельный интерес при этом представляет определение энергии связи атомов гелия с ионами исследуемой керамики.

Для анализа полученных экспериментальных результатов, полученных из исследований растворения гелия в цериево-гадолиниевой керамике, и выявления механизмов растворения и диффузии гелия в данном материале активно используется молекулярно-динамическое моделирование керамики и растворенного в ней гелия.

Параметры парных потенциалов ионов цериево-гадолиниевой керамики подобраны ранее так, чтобы воспроизводить макроскопические параметры кристаллов $\text{Ce}_{1-x}\text{Gd}_x\text{O}_{2-x/2}$ в широком диапазоне температур и концентрации примеси Gd. Заряд ионов керамики по результатам подбора равен величине $q=0.628 \cdot q_v$, где q_v – заряд, соответствующий валентности иона. Этот результат неплохо согласуется с данными по электроотрицательности атомов и нашим расчетом методом Dmol для кристаллита из 32 молекул CeO_2 . Таким образом, заряд ионов керамики, составляет $\text{Ce}^{2.512+}$; $\text{Gd}^{1.884+}$; $\text{O}^{1.256-}$.

Целью данной работы является получение парных потенциалов взаимодействия гелия с ионами керамики конкретным зарядовым состоянием. Однако метод квантово-химического функционала плотности DMol [1, 2] позволяет получить энергию взаимодействия пары частиц только с целочисленным зарядом (как, например, в [3]). Для моделирования взаимодействия $\text{He}-\text{Gd}^{1.884+}$ можно приближенно использовать потенциал взаимодействия $\text{He}-\text{Gd}^{2+}$, полученный прямым расчетом методом Dmol.

Для получения энергии взаимодействия пары частиц с нецелочисленным зарядом необходима дополнительная обработка расчетных квантово-химических данных.

Из прямых квантово-химических расчетов получали энергию взаимодействия атома гелия с ионом керамики, имеющим целочисленный заряд. Энергии взаимодействия атома гелия с нецелочисленно заряженным ионом керамики

получали путем линейной интерполяции полученных данных для соседних целочисленно заряженных ионов. Получены параметры парных потенциалов для пар $\text{He-Ce}^{2.5+}$ и $\text{He-O}^{1.25-}$, проведено их сравнение с данными [3].

Представляет интерес получение уточненных зарядовых состояний ионов керамики и парных потенциалов взаимодействия ионов с атомом гелия из крупномасштабных квантово-химических исследований.

1. Delley B., J. Chem. Phys. 92, 508 (1990)
2. Delley B., J. Chem. Phys. 113, 7756 (2000)
3. Некрасов К.А., Купряжкин А.Я. и др., ВАНТ, сер.: Материаловедение и новые материалы 1, 66, 105 (2006)

МОЛЕКУЛЯРНО-ДИНАМИЧЕСКИЙ РАСЧЕТ КОЭФФИЦИЕНТА ДИФФУЗИИ КСЕНОНА В НАНОРАЗМЕРНЫХ «КАПЛЯХ» РАСПЛАВЛЕННОГО ДИОКСИДА УРАНА

Кичигина Н.В., Некрасов К.А.*

Уральский федеральный университет имени первого Президента России
Б.Н. Ельцина, г. Екатеринбург, Россия

*E-mail: kirillnkr@mail.ru

В работе проведено молекулярно-динамическое моделирование процесса миграции одиночных примесных атомов ксенона в расплавленных наноразмерных «каплях» диоксида урана ($\text{UO}_{2.000}$), изолированных в вакууме. Предложена методика определения модельного коэффициента диффузии ксенона на основании таких расчетов. Необходимая производительность моделирования достигнута благодаря распараллеливанию вычислений на графических процессорах архитектуры CUDA.

Модельные «капли» диоксида урана представляли собой системы из 70 тыс. ионов урана и кислорода с парными потенциалами взаимодействия [1] при температуре $T = 4000$ К. Позициями ионов в начальный момент времени были узлы кристаллической решетки UO_2 . Эволюцию системы отслеживали обычным для молекулярной динамики интегрированием ньютоновских уравнений движения методом Верлета с полушагом. Шаг интегрирования по времени составлял $3 \cdot 10^{-15}$ с. Расплав получали в ходе моделирования. Единственный атом ксенона размещали в одной из центральных междоузельных позиций исходного кристаллита (внедрение нескольких атомов приводило к формированию пузырьков).

Для определения коэффициента диффузии ксенона использовали временные зависимости средних значений плотности радиального распределения ксенона по объему «капли», потока ксенона из «капли» через поверхность, а также